

Translation

REPLACES  
ART 34A

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

10/539610

PCT/EP2003/014187



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 0000054179	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/014187	International filing date (day/month/year) 13 December 2003 (13.12.2003)	Priority date (day/month/year) 19 December 2002 (19.12.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 263/20		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.  <input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.
3. This report contains indications relating to the following items:  I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 03 May 2004 (03.05.2004)	Date of completion of this report 13 July 2004 (13.07.2004)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP2003/014187

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages 1-7, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages 1-9, filed with the letter of 22.6.04
- ☐ the drawings:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/14187

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

Reference is made to the following documents:

D1: US-A-3 410 888 (HAMMOND PHILIP D), mentioned in the application

D2: FR-A-1 399 472 (FMC CORP)

**2. Novelty**

D1 and D2 likewise describe methods for isolating aromatic isocyanates using two distillation devices. However, pressure release between the two columns and heat transfer from the vapour cannot be derived from the teaching of D1 and D2.

The subject matter of claims 1 to 9 can therefore be considered novel.

**3. Inventive step**

The application addresses the following problem (see description, page 4, lines 5 to 9): providing an improved method for separating isocyanates (complete separation and energy savings).

D1 and D2 are equally relevant for assessing inventive step and can be considered the closest prior art.

Since all the essential measures of the method are included in claim 1, an inventive step can be acknowledged

for the subject matter of the application and substantiated as follows:

A person skilled in the art knows that pressure release between two distillation columns and a transfer of the energy of the vapour from the first apparatus to the liquid phase of the second brings about energy savings. However, there is nothing whatsoever to suggest to a person skilled in the art how this technique can be adapted to the separation of isocyanates.

REPLACED BY  
ART 34 ANDT

We claim:

1. A process for preparing isocyanates by reaction of amines  
5 with phosgene in the presence of inert organic solvents in a reactor and subsequent work-up of the reaction mixture leaving the reactor, wherein the solvent is separated off in a two-stage or multistage, preferably two-stage, distillation process in which the solvent is separated off at a pressure  
10 of from 0.1 to 15 bar in a first apparatus and at from 1 to 900 mbar in a second apparatus or further apparatuses, with the heat of condensation of the solvent vapor from the first apparatus being used for partial or complete vaporization of solvent in the second apparatus.
- 15 2. A process as claimed in claim 1, wherein distillation columns are used as apparatuses for separating off the solvent.
3. A process as claimed in claim 1 or 2, wherein the pressure in  
20 the first apparatus is from 0.5 to 3 bar.
4. A process as claimed in any of claims 1 to 3, wherein the pressure in the second apparatus is from 50 to 500 mbar.
- 25 5. A process as claimed in any of claims 1 to 4, wherein a heat exchanger is used as apparatus for transferring heat from the vapor from one apparatus to the liquid phase of the following apparatus.
- 30 6. A process as claimed in any of claims 1 to 5, wherein a purification by distillation of the solvent is subsequently carried out at pressures of from 0.5 bar to 3 bar.
- 35 7. A process as claimed in any of claims 1 to 6, wherein the thermal coupling is achieved by means of a flow-through vaporizer, preferably a falling film evaporator, long-tube evaporator or thin film evaporator.
- 40 8. A process as claimed in any of claims 1 to 7, wherein the solvent used is chlorobenzene, dichlorobenzene or a mixture of the two or toluene.
- 45 9. A process as claimed in any of claims 1 to 8, wherein the isocyanate is tolylene diisocyanate (TDI), methylene-4,4'-, -2,4'- or -2,2'-di(phenyl isocyanate) (MDI) or a mixture of these isomers or polymethylenepolyphenylene polyisocyanate

REF ID:  
ART 344001

(PMDI) or a mixture of MDI and PMDI or hexamethylene diisocyanate (HDI) or isophorone diisocyanate (IPDI).

5

10

15

20

25

30

35

40

45

NOB PCT/PTC 17 JUN 2003

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

RECEIVED 14 JUL 2004

WIPO PCT

10/539610

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000054179	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/4187	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 13.12.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 19.12.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C263/20		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
- ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).
- Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
- I ☒ Grundlage des Bescheids
  - II ☐ Priorität
  - III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
  - IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
  - V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
  - VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
  - VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
  - VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  03.05.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  13.07.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  <div style="display: flex; align-items: center;"> <div>                         Europäisches Patentamt - Gitschiner Str. 103                          D-10958 Berlin                          Tel. +49 30 25901 - 0                          Fax: +49 30 25901 - 840                     </div> </div>	Bevollmächtigter Bediensteter  Rufet, J  Tel. +49 30 25901-332



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-7 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-9 eingegangen am 23.06.2004 mit Schreiben vom 22.06.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,      Seiten:
- ☐ Ansprüche,      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,      Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |                                       |
|--------------------------------|---------------------------------------|
| 1. Feststellung                |                                       |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-9<br>Nein: Ansprüche  |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-9<br>Nein: Ansprüche  |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche 1-9<br>Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: US-A-3 410 888 (HAMMOND PHILIP D) in der Anmeldung erwähnt  
D2: FR-A-1 399 472 (FMC CORP)

**2. Neuheit**

Entgegenhaltungen D1-D2 beschreiben ebenfalls Verfahren zur Isolierung von aromatischen Isocyanaten unter Verwendung von 2 Destillationseinrichtungen, wobei eine Druckentspannung zwischen den zwei Kolonnen sowie eine Wärmeübertragung vom Brüden aus der Lehre von D1-D2 nicht zu entnehmen sind.

Der Gegenstand der Ansprüche 1-9 kann somit als neu angesehen werden.

**3. Erfinderische Tätigkeit**

Der Anmeldung ist folgende, der Erfindung zugrunde liegende Aufgabe zu entnehmen (siehe Beschreibung Seite 4, Z. 5-9): Es soll ein verbessertes Verfahren zur Abtrennung von Isocyanaten bereitgestellt werden (vollständige Abtrennung sowie Einsparungen an Energie).

D1 und D2 sind für die Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit gleich relevant und als nächster Stand der Technik zu betrachten.

Nachdem alle wesentliche Verfahrensmaßnahmen in Anspruch 1 aufgenommen wurden, kann eine erfinderische Tätigkeit für den Anmeldungsgegenstand anerkannt und wie folgt begründet werden:

Es ist für den Fachmann bekannt, daß durch eine Druckentspannung zwischen zwei Destillationskolonnen und Übertragung der Energie des Brüden aus dem ersten Apparat auf die Flüssigphase des zweiten Energie gespart werden kann.

Es fehlt jedoch dem Fachmann jeglicher Hinweis wie diese Technik auf die Abtrennung von Isocyanaten angepaßt werden kann.

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung  
5 von Aminen mit Phosgen im Beisein von inerten organischen  
Lösungsmitteln in einem Reaktor und anschließende Aufarbei-  
tung des den Reaktor verlassenden Reaktionsgemisches, dadurch  
gekennzeichnet, dass die Lösungsmittelabtrennung in einem  
10 zwei- oder mehrstufigen destillativen Verfahren erfolgt und  
wobei das Lösungsmittel in einem ersten Apparat bei einem  
Druck von 0,1 bis 15 bar und in einem zweiten oder weiteren  
Apparaten, bei 1 bis 900 mbar abgetrennt wird, wobei das  
Druckniveau im zweiten Apparat niedriger ist als im ersten  
Apparat; die Sumpftemperatur der ersten Kolonne je nach Druck  
15 zwischen 60°C bei 0,1 bar und 270°C bei 15 bar und die der  
zweiten Kolonne je nach Druck zwischen 75°C bei 1 mbar und  
250°C bei 900 mbar liegt und die Kondensationswärme des Lö-  
sungsmitteldampfes aus dem ersten Apparat zur partiellen oder  
vollständigen Verdampfung von Lösungsmittel im zweiten Appa-  
20 rat verwendet wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als  
Apparate zur Lösungsmittelabtrennung Destillationskolonnen  
verwendet werden.
- 25 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet,  
dass der Druck im ersten Apparat 0,5 bis 3 bar beträgt.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekenn-  
30 zeichnet, dass der Druck im zweiten Apparat 50 bis 500 mbar  
beträgt.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekenn-  
zeichnet, dass als Apparat zur Wärmeübertragung vom Brüden  
35 des vorhergehenden Apparates auf die Flüssigphase des nach-  
folgenden Apparates ein Wärmetauscher verwendet wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekenn-  
40 zeichnet, dass nachfolgend eine Reindestillation des Lösungs-  
mittels bei Drücken zwischen 0,5 bar und 3 bar durchgeführt  
wird.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekenn-  
45 zeichnet, dass der Wärmeverbund durch einen Durchlaufverdamp-  
fer, vorzugsweise einen Fallfilmverdampfer, Langrohrverdamp-  
fer oder Dünnschichtverdampfer realisiert wird.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass als Lösungsmittel Chlorbenzol, Dichlorbenzol oder Mischungen der beiden oder Toluol verwendet wird.

5 9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das Isocyanat Toluylendiisocyanat (TDI),  
4,4'-, 2,4'-, 2,2'-Methylendi(phenylisocyanat) (MDI) sowie  
10 Mischungen dieser Isomere oder Polymethylenpolyphenylenpolyisocyanat (PMDI) oder Mischungen von MDI und PMDI oder Hexamethylendiisocyanat (HDI) oder Isophorondiisocyanat (IPDI) ist.

15

20

25

30

35

40

45